

Министерство образования и науки РФ
Федеральное государственное автономное образовательное учреждение
высшего профессионального образования
«СИБИРСКИЙ ФЕДЕРАЛЬНЫЙ УНИВЕРСИТЕТ»

Кафедра композиционных материалов и физико-химии металлургических
процессов

АННОТАЦИЯ

научно - квалификационной работы
на тему:

«Отверждение жидких радиоактивных отходов методом цементирования»

Направление подготовки: 22.06.01 Технология материалов

Направленность
(профиль)/специализация 05.16.06 Порошковая металлургия
и композиционные материалы

Аспирант



Приходов Д.А.

Научный руководитель



д.х.н., профессор
Шиманский А.Ф.

Красноярск 2018

Актуальность работы.

В России создана собственная правовая и организационная система обеспечения и регулирования ядерной и радиационной безопасности, соответствующая международным конвенциям, признанных Российской Федерацией. Существующая в нашей стране система обращения с радиоактивными отходами сформировалась в процессе развития в СССР ядерных технологий и в силу этого имеет ряд характерных особенностей, которые отличают ее от других стран. Наиболее широко используемым в данное время процессом отверждения жидких радиоактивных отходов низкого и среднего уровней активности является включение жидких радиоактивных отходов в неорганические вяжущие.

Процесс производства смешанного уран-плутониевого топлива сопровождается образованием альфа-радиоактивных отходов, требующих особых методов обращения. В таких странах как США, Германия, Франция, Япония и Бельгия процесс цементирования относится к традиционным методам иммобилизации радиоактивных, в том числе и альфа-радиоактивных отходов.

В настоящее время наиболее широко используется процесс цементирования как технология кондиционирования жидких радиоактивных отходов и представляет собой процесс иммобилизации отходов в цементную матрицу с получением твёрдого конечного продукта (цементного компаунда), направляемого далее на безопасное длительное хранение. Процесс цементирования заключается в смешении жидких солевых концентратов и пульп с цементом с последующим схватыванием и образованием твердого монолита.

Выбор цементов различных типов для фиксации альфа-радиоактивных отходов обусловлен комплексом уникальных свойств вяжущего компонента. Цементные компаунды прекрасно удерживают актиноиды. Цементы пригодны для кондиционирования твердых отходов и гетерогенных пульп.

Они характеризуются высокой термической устойчивостью за счет оптимальной технологии, в том числе, низкотемпературного цементирования. Цементный компаунд образован термодинамически стабильными гидратированными солями. Основными требованиями, предъявляемыми к конечным формам отвержденных радиоактивных отходов, являются их достаточная механическая, физическая и химическая стабильность, обеспечивающая безопасность обращения, транспортировку и хранение, а также совместимость упаковки и формы отвержденных отходов с условиями в хранилище, что позволяет свести к минимуму поступление радионуклидов в биосферу.

Если принять, что надежность природных и инженерных барьеров хранилища отвержденных упаковок с отходами позволит увеличить допустимое содержание отдельных радионуклидов (прежде всего актиноидов) в отходах, подлежащих отверждению, становится очевидной целесообразность проведения исследований, направленных на увеличение степени наполнения цементного компаунда элементами радиоактивных отходов и оценку влияния повышенного содержания радионуклидов на его качество. Положительный результат исследований приведет к увеличению удельного объема захораниваемых отходов и, следовательно, к снижению расходов на создание и эксплуатацию хранилища отвержденных радиоактивных отходов.

Объект исследования – цементный компаунд.

Предмет исследования – повышение степени наполнения цементного компаунда элементами радиоактивных отходов.

Цель исследования - разработка состава композиционного материала на основе цементной матрице, для иммобилизации радиоактивных отходов, отличающегося повышенной прочностью на сжатие и максимальной степенью наполнения элементами отходов.

Для достижения поставленной цели предусматривалось решение следующих **задач**:

- исследование влияния содержания отдельных радионуклидов на качество цементного компаунда;
- изучение влияния способов механоактивации цементной композиции на физико-механические и эксплуатационные свойства компаунда;
- исследование влияния армирующих наполнителей на механические свойства цементного компаунда;
- определение оптимального состава и технологических параметров получения композиционных материалов на основе неорганического вяжущего с армирующими наполнителями.

Научная новизна.

1. Установлено, что механическая прочность цементного компаунда не зависит от содержания отдельных радионуклидов, а определяется прежде всего общим содержанием отходов.

2. При повышении степени наполнения компаунда радиоактивными отходами его прочность будет определяться долей вяжущего материала. Применение различных сорбционных добавок приводит к уменьшению доли вяжущего в компаунде и дополнительному снижению его прочности.

3. Для улучшения физико-механических и эксплуатационных свойств портландцемента применялся метод механоактивирования компонентов бетонной смеси в планетарной шаровой мельнице. Установлено, что при совместном механоактивировании цемента и графита распределение по размерам частиц смеси цемента является более однородным и отличается большим содержанием гексагональных и призматических кристаллов трехкальциевого силиката $3\text{CaO} \cdot 2\text{SiO}_2$, который и определяет высокую прочность портландцемента.

4. Предложено для увеличения степени наполнения цементного компаунда радиоактивными отходами в качестве армирующего наполнителя использовать многослойные углеродные нанотрубки и пирогенный кремнезем (аэросил).

5. Для максимального повышения прочности цементных компаундов необходимо углеродные нанотрубки вносить в цементную систему с водой затворения.

Практическая значимость. Внедрение результатов работы.

Разработан состав вяжущего для цементирования жидких радиоактивных отходов, состоящий из портландцементной матрицы, которая дополнительно содержит в качестве армирующего наполнителя многослойные углеродные нанотрубки, при этом портландцемент предварительно механоактивируют в планетарной шаровой мельнице.

Достигнутый результат от применения многослойных углеродных нанотрубок и проведения механоактивирования портландцемента для отверждения реальных радиоактивных отходов (пульп) позволил увеличить содержание отходов в компаундах в 5 раз без снижения его качества.

Основные положения работы изложены и обсуждены на ежегодной международной научно-практической конференции для студентов, аспирантов и молодых ученых «Молодежь и наука: Проспект свободный» ФГОУ ВПО «СФУ» г. Красноярск, 2015–2016 гг.; на 8-ой Всероссийской конференции по радиохимии «Радиохимия-2015», г. Железногорск, 2015 г; на ежегодной отраслевой молодёжной научно-практической конференции «Молодежь ЯТЦ: наука, производство, экологическая безопасность», г. Железногорск, 2015–2017 гг.; на 5-й Международной конференции по химической технологии «Химическая Технология», г. Волгоград, 2016 г.

Методы исследований.

Механоактивирование портландцемента проводили в планетарной шаровой мельнице Retsch PM400MA. Для определения размера частиц и удельной поверхности сыпучих материалов использовали лазерный анализатор размера частиц Fritsch Analysette 22 MicroTec с диапазоном измерений от 80 нм до 2000 мкм.

Механическую прочность образцов на сжатие определяли по отраслевой инструкции «Цементные компаунды на основе радиоактивных отходов. Определение предела прочности на сжатие на испытательной машине марки TESTING ОИ 001.725-2011». Предел прочности цементных компаундов определялся по максимальной нагрузке, которую образец выдерживает, не разрушаясь. Механические испытания на сжатие по ГОСТ 310.4-1981 проводили на гидравлическом прессе ВМ-3,4 с погрешностью измерения $\pm 1 \%$.

Испытания на морозостойкость проводили по отраслевой инструкции «Цементные компаунды. Определение морозостойкости. Методика проведения испытаний ОИ 001.730-2011» и ГОСТ 10060-2012. Для определения морозостойкости использовали шкаф холодильный типа «Ларь» ШН(L)Y-0,175 «Бирюса-200К-5». Определение скорости выщелачивания проводили по ГОСТ Р 52126-2003.

Основные положения, выносимые на представление научного доклада.

1. Количественная зависимость свойств цементного компаунда от степени его наполнения реальными радиоактивными отходами.
2. Результаты экспериментальных исследований влияния механоактивирования портландцемента на физико-механические свойства бетона.
3. Закономерности формирования микроструктуры цементного компаунда с добавлением в его состав углеродных наноструктур фуллероидного типа - многослойных углеродных нанотрубок - и пирогенного кремнезема.
4. Состав вяжущего для цементирования ЖРО и способ его приготовления.

Структура научно - квалификационной работы.

Структура и объём работы определены целью работы и авторским замыслом, отображая последовательность решения поставленных задач.

Научно - квалификационная работа состоит из введения, основной части, содержащей четыре главы, заключения и библиографического списка.

Публикации.

Основное содержание работы отражено в 17 публикациях, в том числе в 1 статье журнала, рекомендованного ВАК для публикации результатов диссертационных работ и 1 положительном решении о выдаче патента.

Работа отмечена почетной грамотой победителя программы «Участник молодежного научно-инновационного конкурса» (УМНИК).

Основное содержание научно - квалификационной работы.

Во введении обосновывается актуальность темы исследования, определяются цели и задачи работы, обозначаются методологические основания работы, раскрывается научная новизна исследования, демонстрируется практическая значимость работы, формулируются положения, выносимые на защиту, приводятся данные о формах апробации основных результатов работы, а также указываются структура и объём исследования.

Первая глава посвящена общей характеристике радиоактивных отходов, их классификации и источникам образования. В главе отражены основные способы и методы иммобилизации жидких форм отходов. Приведены основные аргументы в пользу процесса цементирования для кондиционирования отходов низкого и среднего уровней активности. Рассмотрен механизм иммобилизации радионуклидов в цементной матрице.

Вторая глава охватывает методологию и методику экспериментального исследования, а также обосновывает выбор состава композиционного цементного материала. В качестве рабочей гипотезы для увеличения степени наполнения цементного компаунда отходами радиохимических производств предложено применение армирующих наполнителей, массовая доля которых незначительна (в пределах десятых долей процентов от содержания вяжущего).

Третья глава представляет анализ допустимого содержания отдельных радионуклидов в цементном компаунде. Особое внимание уделено регулированию безопасного содержания радионуклидов в компаунде. Приведены результаты исследования влияния содержания радионуклидов на физико-механические и эксплуатационные свойства цементного компаунда.

В четвертой главе отражены исследования различных способов повышения качества цементного компаунда, за счет введения в его состав армирующих наполнителей и предварительного механоактивирования цементной смеси.

В заключении излагаются основные итоги проведенного исследования, обобщаются главные результаты проделанной работы, формулируются центральные выводы, намечаются перспективы дальнейшего исследования.